

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号

特表2003-508892

(P2003-508892A)

(43)公表日 平成15年3月4日(2003.3.4)

(51)Int.Cl.⁷
H 01 F 1/053
C 22 C 38/00

識別記号
3 0 3

F I
C 22 C 38/00
H 01 F 1/04

テマコード(参考)
3 0 3 D 5 E 0 4 0
H

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 29 頁)

(21)出願番号 特願2000-517425(P2000-517425)
(86) (22)出願日 平成10年10月16日(1998.10.16)
(85)翻訳文提出日 平成12年4月24日(2000.4.24)
(86)国際出願番号 PCT/US98/21884
(87)国際公開番号 WO99/021196
(87)国際公開日 平成11年4月29日(1999.4.29)
(31)優先権主張番号 60/062,940
(32)優先日 平成9年10月22日(1997.10.22)
(33)優先権主張国 米国(US)
(31)優先権主張番号 60/062,939
(32)優先日 平成9年10月22日(1997.10.22)
(33)優先権主張国 米国(US)

(71)出願人 ローディア レアー アース インク
RHODIA RARE EARTH I
NC.
米国、コネティカット州、シェルトン、エ
ンタープライズ ドライブ 3
3 Enterprise Drive
Shelton, Connecticut
US
(72)発明者 マ, バオーミン
米国 ニュージャージー州 ロビンスヴィ
ル ハムトン コート イースト 8
(74)代理人 弁理士 藤沢 則昭 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 鉄-希土類-ホウ素・耐熱金属の磁性微少複合体

(57)【要約】

【課題】 磁性特性を改善し、容易に処理できて、組成を制御された微少複合体の磁性材料を提供する。
【解決手段】式 $(RE_{1-x}La_x)_vFe_{100-v-z}Co_xM_zB_x$ の微少複合体の磁性材料であって、ここで、上記REはCe、Pr、Nd、PM、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であり、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であり、上記vは約5から約15、上記wは0から約40、上記xは約9から約30、上記yは約0.05から約0.5、上記zは約0.1から約5であることとした。

(2)

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 式 $(RE_{1-y}La_y)_v Fe_{100-v-w-x-z} Co_wM_zB_x$ の微少複合体の磁性材料であって、ここで、上記REはCe、Pr、Nd、PM、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であり、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であり、上記vは約5から約15、上記wは0から約40、上記xは約9から約30、上記yは約0.05から約0.5、上記zは約0.1から約5であることを特徴とする、微少複合体の磁性材料。

【請求項 2】 REがNd、Pr、Dy及びTbから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であることを特徴とする、請求項1項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項 3】 REがNd及びPrから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であることを特徴とする、請求項1項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項 4】 MはTi、V、Nb、Cr及びMoから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であって、上記vは約9から約12、上記wは約1から約20、上記xは約9から約12、上記yが約0.05から約0.1、上記zは約0.5から約3であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項 5】 MはTi、Nb又はCrから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であって、上記vは約9.5から約11.5、上記wは約5から約15、上記xは約9.5から約11、上記yが約0.05から約0.07、上記zは約1から約2.5であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項 6】 上記xが約9.5以上であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項 7】 上記xが約10以上であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

(3)

【請求項8】 上記xが約1.0. 5以上であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項9】 材料が、硬質磁性相、軟質磁性相、耐熱金属のホウ化物析出相から成ることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項10】 硬質磁性相がNd₂Fe₁₄Bから成っていて、また、軟質磁性相がα-Fe、α-(Fe、Co)、Fe₃B、(Fe、Co)₃B、Fe₂B、(Fe、Co)₂Bから成るグループから選定した少なくとも一種類の材料から成ることを特徴とする請求項9項記載の微小複合体の磁性材料。

【請求項11】 軟質磁性相がα-Fe、Fe₃B又はその組合せから成ることを特徴とする、請求項10項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項12】 材料が本質的にNd₂Fe₂₃B₃を含まないことを特徴とする、請求項9項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項13】 硬質磁性相の平均粒子サイズが約10から約100ナノメートルであり、軟質磁性相の平均粒子サイズが約2から約60ナノメートルであることを特徴とする、請求項9項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項14】 耐熱金属のホウ化物析出相の平均粒子サイズが約1から約30ナノメートルであることを特徴とする、請求項13項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項15】 材料が粉末形状であることを特徴とする、請求項3項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項16】 粉末の平均粒子サイズが約10から約200ミクロンであることを特徴とする、請求項15項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項17】 粉末が急速に固化され、かつ、熱処理されていることを特徴とする、請求項15項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項18】 粉末の磁性が基本的に等方性であることを特徴とする、請求項15項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項19】 以下からなることを特徴とする、微小複合体の磁性材料。

Fe;

La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、

(4)

Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した全希土類元素が約5から約15原子パーセント、ここで、全希土類元素の少なくとも約5原子パーセントがLaであり、残りの希土類元素の少なくとも約50原子パーセントがNd、Pr又はその組合せ；

ホウ素が約9から約30原子パーセント；

Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属が少なくとも約0.1原子パーセント；

Coが0から約40原子パーセント。

【請求項20】 全希土類元素が約9から約12原子パーセント；ホウ素が約9から約12原子パーセント；耐熱金属が約0.5から約3原子パーセント；Coが約1から約20原子パーセントであることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項21】 全希土類元素が約9.5から約11.5原子パーセント；ホウ素が約9.5から約11原子パーセント；耐熱金属が約1から約2.5原子パーセント；Coが約5から約15原子パーセントであることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項22】 Laが全希土類元素の約5から約50原子パーセントを占めていることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項23】 Laが全希土類元素の約5から約7原子パーセントを占めていることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項24】 耐熱金属の少なくとも一種類はTi、V、Nd、Cr及びMoから成るグループから選定したことを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項25】 材料が、硬質磁性相、軟質磁性相、耐熱金属のホウ化物析出相から成っていることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項26】 硬質磁性相は $RE_2Fe_{14}B$ から成っていて、軟質磁性相は $\alpha-Fe$ 、 $\alpha-(Fe, Co)$ 、 Fe_3B 、 $(Fe, Co)_3B$ 、 Fe_2B 、 $(Fe, Co)_2B$ から成るグループから選定した少なくとも一種類の材料から成

つてていることを特徴とする、請求項25項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項27】 硬質磁性相はNd₂Fe₁₄Bから成っていて、軟質磁性相はα-Fe、Fe₃B又はその組合せから成っていることを特徴とする、請求項26項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項28】 材料が本質的にNd₂Fe₂₃B₃を含まないことを特徴とする、請求項25項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項29】 硬質磁性相の平均粒子サイズが約10から約100ナノメートルであり、軟質磁性相の平均粒子サイズが約2から約60ナノメートルであることを特徴とする、請求項25項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項30】 耐熱金属のホウ化物析出相の平均粒子サイズが約1から約30ナノメートルであることを特徴とする、請求項29項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項31】 材料が粉末形状であることを特徴とする、請求項19項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項32】 粉末の平均粒子サイズが約10から約200ミクロンであることを特徴とする、請求項31項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項33】 粉末が急速に固化され、かつ、熱処理されていることを特徴とする、請求項31項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項34】 粉末の磁性が基本的に等方性であることを特徴とする、請求項31項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項35】 RE₂Fe₁₄Bの硬質磁性相、軟質磁性相及び耐熱金属のホウ化物析出相から成ることを特徴とする、微少複合体の磁性材料。

【請求項36】 軟質磁性相は、α-Fe、α-(Fe、Co)、Fe₃B、(Fe、Co)₃B、Fe₂B、(Fe、Co)₂Bから成るグループから選定した少なくとも一種類の材料から成っていることを特徴とする請求項35項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項37】 硬質磁性相がNd₂Fe₁₄Bから成っていて、軟質磁性相はα-Fe、Fe₃B又はその組合せから成っていることを特徴とする、請求項36項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項38】 材料が本質的に $RE_2Fe_{23}B_3$ を含まないことを特徴とする、請求項36項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項39】 硬質磁性相の平均粒子サイズが約10から約100ナノメートルであり、軟質磁性相の平均粒子サイズが約2から約60ナノメートルであることを特徴とする、請求項36項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項40】 耐熱金属のホウ化物析出相の平均粒子サイズが約1から約30ナノメートルであることを特徴とする、請求項39項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項41】 材料が粉末形状であることを特徴とする、請求項35項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項42】 粉末の平均粒子サイズが約10から約200ミクロンであることを特徴とする、請求項41項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項43】 粉末が急速に固化され、かつ、熱処理されていることを特徴とする、請求項41項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項44】 粉末の磁性が基本的に等方性であることを特徴とする、請求項41項記載の微少複合体の磁性材料。

【請求項45】 以下から成ることを特徴とする、微少複合体の磁性材料の製造法。

まず、以下から成る溶融複合体を用意する：

Fe；

La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した全希土類元素が約5から約15原子パーセント、ここで、全希土類元素の少なくとも約5原子パーセントがLaであり、残りの希土類元素の少なくとも約50原子パーセントがNd、Pr又はその組合せ；

ホウ素が約9から約30原子パーセント；

Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属が少なくとも約0.1原子パーセント；

Coが0から約40原子パーセント、

(7)

そして、この溶融複合体を本質的にアモルファス生成物を生じるように、急速に固化し、また、その本質的にアモルファス生成物を熱処理して、微少複合体の磁性材料を形成する。

【請求項4 6】式 $(R\text{E}_{1-y}L\text{a}_y)_vFe_{100-v-w-x-z}\text{Co}_wM_zB_x$ の微少複合体の磁性材料であって、ここで、上記REはNd、Pr、Dy及びTbから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であり、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であり、上記vは約5から約15、上記wは0から約40、上記xは約9から約30、上記yは約0.01から約0.5、上記zは約0.1から約5であることを特徴とする、請求項4 5項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項4 7】 $RE_2Fe_{14}B$ の硬質磁性相、軟質磁性相及び耐熱金属のホウ化物析出相から成ることを特徴とする、請求項4 5項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項4 8】 さらに、溶融複合体を毎秒約 10^5 °Cから約 10^6 °Cの割合で急速固化したことを特徴とする、請求項4 5項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項4 9】 さらに、溶融複合体をメルト・スピニング法により急速に固化したことを特徴とする、請求項4 8項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項5 0】 热処理前に本質的にアモルファスの生成物を粉碎することを特徴とする、請求項4 5項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項5 1】 さらに、結晶性磁気層に結晶核を生成させるが、核を生じた結晶性磁気層で本質的に結晶粒を成長させないために基本的にアモルファス生成物を十分な温度で十分な時間熱処理することを特徴とする、請求項4 5項記載の微少複合体の磁性材料の製造方法。

【請求項5 2】 以下から成ることを特徴とする、ボンド磁石。

式 $(R\text{E}_{1-y}L\text{a}_y)_vFe_{100-v-w-x-z}\text{Co}_wM_zB_x$ の微少複合体の磁性材料であって、ここで、上記REはCe、Pr、Nd、Pm、Sm

、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であり、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であり、上記vは約5から約15、上記wは0から約40、上記xは約9から約30、上記yは約0.05から約0.5、上記zは約0.1から約5である、及び、バインダー。

【請求項53】 バインダーがボンド磁石の約0.5から約4重量パーセントであることを特徴とする、請求項52項記載のボンド磁石。

【請求項54】 以下から成ることを特徴とする、ボンド磁石の製造方法。
 式 $(RE_{1-y}La_y)_vFe_{100-v-w-x-z}Co_wM_zB_x$ の粉末化した微少複合体の磁性材料を用意し、ここで、上記REはCe、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuから成るグループから選定した少なくとも一種類の元素であり、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo及びWから成るグループから選定した少なくとも一種類の耐熱金属であり、上記vは約5から約15、上記wは0から約40、上記xは約9から約30、上記yは約0.05から約0.5、上記zは約0.1から約5であり、そして、粉末化した微少複合体の磁気材料にバインダーを混合し、バインダーを加熱することによりボンド磁石を形成する。

【発明の詳細な説明】**【0001】****【発明の属する技術分野】**

この発明は、磁性材料に関するもので、より具体的には、鉄、希土類元素、ホウ素及び耐熱金属を含み、好ましい磁性特性を持ち、ボンド磁石を作るのに適した微少複合体の磁性材料に関するもの。

【0002】**【従来の技術】**

ネオジウム、鉄、ホウ素を含む磁性合金はその好ましい磁性材料により、焼結磁石及びボンド磁石に用いるために広く研究されている。Nd₂Fe₁₄B相が特に良い磁性特性を示す硬質磁性相として特定されている。

【0003】

米国特許第4,402,770号、第4,409,043号、Re.34,322t o Koonが参考文献として本明細書に組み込まれているが、ランタンなどの他の希土類元素、鉄、コバルト、ホウ素のような遷移金属を指定範囲内で含んでいる磁性合金を開示している。

【0004】**【発明が解決しようとする課題】**

しかしながら、開示された合金は良好な磁性特性を保持していることが見出されているけれども、そのような合金は最適特性ではなく、商用的に有効ではなかった。

【0005】

この発明は、前述の見解に基づいて開発され、以前の技術の他の欠陥にも対応している。

この発明は、磁性特性を改善し、容易に処理できて、組成を制御された微少複合体の磁性材料を提供している。

【0006】**【課題を解決するための手段】**

この発明の目的は、Fe、希土類元素、B、耐熱金属及び随意的にCoを指定

(10)

範囲内で含む微少複合体の磁性材料を提供することである。

この発明の他の目的は式：(Nd_{1-y}La_y)_vFe_{100-v-w-x-z}C_wM_zB_xの微少複合体の磁性材料を提供することである。ここで、上記MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、Wから選定した少なくとも一種類の耐熱金属である。上記vは約5から約15まで、上記wは0から約4.0まで、上記xは約9から約3.0まで、上記yは約0..0.5から約0..5まで、上記zは約0..1から約5までである。

【0007】

この発明の別の目的は硬質磁性相、軟質磁性相、耐熱金属のホウ化物析出相を含む微少複合体の磁性材料を提供することである。硬質磁性相材料は好ましくはNd₂Fe₁₄Bであり、軟質磁性相はα-Fe、Fe₃B又はその組合せから成っている。

この発明の他の目的は微少複合体の磁性材料を作る方法を提供することである。この方法には、Fe、希土類元素、B、少なくとも一種類の耐熱金属、及び、随意的にCoから成る溶融組成を提供するステップ（複数）を含み、その組成を急速固化して基本的にアモルファスの材料を形成し、その材料を熱処理して、希望の組成とサイズの結晶性磁性相を形成する。

この発明のこれらの目的及び他の目的は以下の説明でより明確になる。

【0008】

【発明の実施の形態】

この発明の磁性微少複合体の成分には希土類元素、鉄、ホウ素、耐熱金属及び随意的にコバルトを含む。適当な希土類元素にはLa、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luが含まれている。今回の複合体の希土類の全含有量をここでは“TRE”として示している。ここで用いている“RE”的用語はLaを除く適当な希土類元素全部を意味している。好ましいRE元素はNd、Pr、Dy、Tb及びその混合物であり、Nd、Pr及びその混合物がもっとも好ましい。

適当な耐熱金属には、周期律表のIVb、Vb、VIbグループの元素、例えば、Ti、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、Wが含まれる。今回の組

(11)

成中で耐熱金属成分を“M”として示している。TRE、B、M、Coの「典型的」、「好ましい」、「特に好ましい」の各範囲を表1に示す。

【0009】

【表1】

Compositions (atomic percent)
組成(原子パーセント)

	TRE	B	M	Co	Fe
典型的	5-15	9-30	0.1-5	0-40	バランス
好ましい	9-12	9-12	0.5-3	1-20	バランス
特に好ましい	9.5-11.5	9.5-11	1-2.5	5-15	バランス

【0010】

この発明に基づくと、この発明の組成は式： $(R_E 1 - y La_y) v Fe_{100} - v - w - x - z Co_w M_z B_x$ に対応しうる。ここで、REはLaを除く少なくとも一種の希土類元素である。MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、Wから選定した少なくとも一種の耐熱金属である。上記vは約5から約15まで、上記wは0から約40まで、上記xは約9から約30まで、上記yは約0.05から約0.5まで、上記zは約0.1から約5までである。好ましくは、REはNd、Pr、Dy、Tbから選んだ少なくとも一種類の元素である。MはTi、V、Nb、Cr、Moから選定した少なくとも一種の耐熱金属である。上記vは約9から約12まで、上記wは約1から約20まで、上記xは約9から約12まで、上記yは約0.05から約0.1まで、上記zは約0.5から約3までである。さらに好ましくは、REはNd、Pr又はその混合物である。MはTi、Nb又はCrである。上記vは約9.5から約11.5まで、上記wは約5から約15まで、上記xは約9.5から約11まで、上記yは約0.05から約0.1まで、上記zは約1から約2.5までである。特に好ましい組成は、上記vは約11.0、上記wは約10、上記xは約10.5、上記yは約0.05又は0.075、上記zは約2である。

【0011】

代替的に、この発明の組成は式： $(Fe_w M_x B_{1-w-x}) 1 - y (R_z$

(12)

$\text{La}_{1-z} \text{y}$ で表示しうる。ここで、MはTi、Zr、Hf、V、Nb、Ta、Cr、Mo、Wから選定した少なくとも一種の耐熱金属である。RはCe、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、By、Luから選定した少なくとも一種類の希土類元素である。上記wは約0.7から約0.9まで、上記xは約0.001から約0.06まで、上記yは約0.05から約0.15まで、上記zは約0.5から約0.95までである。また、約4.0原子パーセントまでのFeを随意的にCoで置き換えられる。この代替的記述は米国特許第4,402,770 to Koonで用いられている記述と類似している。この発明に基づけば、米国特許第4,402,770 to Koonで開示されているのと同様の組成までに量を制御して耐熱金属を添加することはその複合体の特性を基本的に改善することが認められていて、商用的に使える磁性微少複合体の材料が得られる。

【0012】

今回の組成のTRE成分は好ましい特性を得るために制御されている。ネオジウムは好ましい希土類元素であり、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ という望ましい分子構成を形成するのに十分な量で与えられている。Ndの一部又は全部をPrにより置き換えられる。好ましいTRE成分には少量のLaを含めるといくつかの利点が得られる。例えば、Laはガラス形成因子で、急速固化によりアモルファス前駆体の合金形成を容易にする。さらに、急速固化アモルファス合金をその後に熱処理する際、Laは粒子成長を抑制することが認められている。Laは複合体中の全希土類成分の約5乃至約50原子パーセント含めるのが好ましい。

【0013】

今回の複合体中のB成分は好ましい量の硬質磁性相（例えば $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ）を形成するように、また、複合体中に耐熱金属成分のホウ化物を形成するように制御される。以下で詳しく説明しているように、そのようなホウ化物は析出硬化相又は粒子微細化相として機能し、複合体の特性を本質的に改善する。さらに、Bはガラス形成因子であり、複合体の急速固化の際にアモルファス生成物を形成しやすくする。微少複合体の材料特性を改善するために十分な量のBを用いるべきである。約9乃至9.5原子パーセント以上のホウ素量が好ましい。約10乃

(13)

至10.5原子パーセント以上の量が特に好ましい。

【0014】

この複合体の耐熱金属（M）成分は複合体の粒子微細化を生じる一方で磁性特性の本質的劣化を避けるように制御される。少なくとも耐熱金属の一部はホウ素と反応してホウ化物になる。この反応が磁性相の粒子核の均一な形成を促進する。耐熱性ホウ化物は、少なくともその一部が磁性相の粒子境界に位置することにより、粒子の微細化を生じる。さらに、耐熱性金属ホウ化物は、好ましくないNd₂Fe₂₃B₃の形成を抑制し、Nd₂Fe₁₄B及び α -Feの磁性相形成を促進する。しかしながら、濃度が高くなりすぎると、耐熱金属が好ましくない程度までホウ素と反応して、磁性相の結晶間の三重結合部分に位置する大粒子を形成する。さらに、耐熱金属の存在量が多すぎると、選択的にホウ素と反応し、それにより、好ましいNd₂Fe₁₄B硬質磁性相の形成を抑制する。

【0015】

コバルトは残留磁力と最大エネルギー積という磁性特性を高めるために今回の複合体に添加して良い。さらに、コバルトの添加は硬質磁性相のキュリー温度（Tc）を高くし、溶融合金の流動性を高める。

【0016】

この発明の微少複合体の材料は好ましくは硬質磁性相、軟質磁性相、耐熱金属のホウ化物析出相から成っている。硬質磁性相はRE₂Fe₁₄Bから成っていて、軟質磁性材料は、 α -Fe、 α -（Fe、Co）、Fe₃B、（Fe、Co）₃B、Fe₂B、（Fe、Co）₂Bから成っている。典型的には硬質磁性相はNd₂Fe₁₄Bから成り、軟質磁性相は α -Fe、Fe₃B又はその組合せから成っている。耐熱金属のホウ化物析出相はTiB、Ti₃B₄、TiB₂、NbB₂、Nb、Nb₃B₂、CrB、CrB₂、Cr₃B₄、Mo₂B、MoB、Mo₂B₅、Mo₄、ZrB₂、W₂B、WB、W₂B₅、WB₅、VB、V₃B₄、VB₂及びその組合せのようなホウ化物で構成しうる。耐熱金属析出物の平均サイズは典型的には約1ナノメートルから約30ナノメートルである。耐熱金属のホウ化物の析出物は核生成位置を提供し、粒子微細化因子として機能し、複合体の磁性特性を本質的に改善する。

(14)

【0017】

磁気特性を好ましくない程度に劣化させる相は複合体内で最小限にし、又は、無くすことが望ましい。例えば、 $RE_2Fe_{23}B_3$ （例えば $Nd_2Fe_{23}B_3$ ）準安定相は減少し又は無くすことが好ましい。 Nd - Fe 共晶体、 Nd_2Fe_{17} 、 Nd_2Co_{17} 、 $NdFe_4B_4$ のような他の相も、また、複合体内で減少し又は無くせるかも知れない。この発明に基づくと、耐熱金属の組み込み及びそれによる耐熱金属のホウ化物析出相の形成が $Nd_2Fe_{23}B_3$ 準安定相の形成を抑制することが見出された。この発明以前には、約9乃至10原子パーセント以上の量のボウ素及び約7から約11.7原子パーセントの量の希土類を含む合金組成は掘り下げた研究が行われず、公開文献での報告もされていない。これは $Nd_2Fe_{23}B_3$ のような望ましくない相が形成すること、及び、軟質磁性材料が存在したときに、十分高い固有保磁力（ H_{ci} ）を持つ材料を得ることが困難だったことによる。

【0018】

この発明の微少複合体の材料は約10乃至約200ミクロンという好ましい平均粒子サイズを有する粉末形状をしてることが好ましい。粉末は磁的に等方性を有し、残留磁力（ B_r ）、固有保磁力（ H_{ci} ）及び／又は最大エネルギー積（ BH_{max} ）のような好ましい磁性特性を有することが好ましい。材料は約7.2KG以上の B_r 、約6.0KOe以上の H_{ci} 、約8.0MGOe以上の BH_{max} を有することが好ましい。

【0019】

特定の理論に拘束されるつもりはないが、この発明の微少複合体の材料は制御されたサイズと好ましい分布を有する硬質及び軟質の磁性相の組合せに基づく交換結合（exchange coupling）を示すと信じられる。ここで用いる場合、「交換結合」とは硬質と軟質の磁性相の間で電子交換をするように結合した相互作用を意味する。軟質磁性相の平均粒子サイズは硬質磁性相（例えば $Nd_2Fe_{14}B$ ）のドメイン壁幅より小さいことが好ましい。軟質磁性相の平均粒子サイズは好ましくは約2ナノメートルから約60ナノメートルである。一方、硬質磁性相の平均粒子サイズは約10ナノメートルから約100ナノメートルである。より好ましくは、軟質磁性相は約2ナノメートルから約30ナノメートル

ルの平均粒子サイズである。一方、硬質磁性相の平均粒子サイズは約10ナノメートルから約50ナノメートルである。有効な交換結合を生じるには、軟質磁性相の平均粒子サイズが硬質磁性相のドメイン壁幅より大きくないことが望ましいはずである。硬質磁性相Nd₂Fe₁₄Bの場合、約10ナノメートルから約30ナノメートルであると推定されている。

【0020】

この発明に基づくと、軟質と硬質の磁性相の粒子サイズは熱処理条件だけでなく、耐熱金属のホウ化物析出相により制御される。耐熱金属のホウ化物析出相の粒子微細化効果が交換結合を促進し、微少複合体材料の磁性特性と加工性を基本的に改善する。

【0021】

この発明の磁性材料は好ましくは急速固化と熱処理プロセスにより製造される。急速固化は、メルト・スピニング (melt spinning)、噴流鋳造 (jet casting)、融解抽出 (melt extraction)、霧化・平板冷却 (atomization and splat cooling) のような技術により複合体を溶融状態から急速に冷却することにより達成される。約10⁴から10⁷°C/秒の冷却速度が一般に使われる。好ましくは約10⁵から10⁶°C/秒の冷却速度である。急速固化材料は基本的にアモルファスになっているのが好ましい。急速固化の後で、材料を粉碎して良く、粉碎・熱処理をしても良く、又は、直接熱処理をしても良い。

【0022】

この発明の複合体は優れた加工性を有し、使用すべき急速固化速度を遅くできることが示されている。例えば、メルト・スピニング法の際、回転ホイールの速度を遅くでき、及び／又は大量の材料を処理できる。ホイール速度を低くすると、スピニング・ホイールに接触している溶融合金パドルが本質的に安定するので、メルト・スピニングのホイール速度を低くできることは重要である。さらに、大量の材料を処理できることにより製造コストを低減できる。

【0023】

複合体を急速固化して、本質的にアモルファス状態にした後で、自然的結晶化

を生じるように熱処理するのが好ましい。ここで用いる場合、「自然的結晶化」の用語は急速かつ本質的に均一な微細結晶粒子の形成を意味する。この発明に基づくと、耐熱金属ホウ化物相は粒子微細化因子として機能する。さらに、ホウ化物相は軟質及び硬質の磁性相のための核生成位置を提供すると信じられるが、核生成後には本質的な粒子成長が見られていない。

【0024】

自然的結晶化は時間を制御しながら材料を指定温度に加熱することにより達成され、結晶粒子の核生成を生じるが、その後の基本的粒子成長は生じないのが好ましい。約400°Cから約800°Cの温度が適当で、好ましくは、約650°Cから約750°Cである。加熱時間は約0.001秒から約2時間の加熱時間が好ましい。より好ましくは、約0.01秒から約10分である。炉のような適当な装置で材料を加熱して良い。連続型及び／又はバッチ型の加熱法を使用する。好ましくは、材料を結晶化温度まで加熱してから、本質的に粒子成長を生じる前に熱源を除去する。

以下の例はこの発明の種々の側面を示しているが、その範囲に限定する趣旨ではない。

【0025】

実施例1

$\text{Nd}_{9.5}\text{Fe}_{85.5-x}\text{B}_x$ の合金インゴットは真空誘導溶融により調製される。ここで、 $x = 5, 6, 7, 8, 9, 10$ 及び 10.5 である。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット鋳造機を使用している。サンプル調製には $15 - 30 \text{ m/sec}$ のホイール速度を用いる。パーキン・エルマー社の示差熱分析装置(DTA-7)により結晶化温度を決定する。ジーメンス社のX線回析計を用いて、スピニング時点で材料のアモルファス化の程度を決定する。図2は 18 m/sec のホイール速度で $\text{Nd}_{9.5}\text{Fe}_{85.5-x}\text{B}_x$ にメルト・スピニング処理をした場合のX線回析パターンを示している。ここで、 $x = 10.5$ (パターンa)、 $x = 9$ (パターンb)、 $x = 7$ (パターンc)、 $x = 5$ (パターンd)である。示されているように、 $x < 9$ では、メルト・スピニング状態で得られた材料は部分的に結晶化されている。 $\alpha-\text{Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の両方が

(17)

存在している。ホウ素含有量が高くなると共に α -Fe の量が減少する。 $x > 9.5$ になると、これらの材料はほぼアモルファスになり、 α -Fe が減少する。表 2 は熱処理後の最適磁性特性を示している。全体として、ホウ素含有量が約 9 原子パーセントまで上昇すると共に H_{ci} が減少する。その後、ホウ素量が約 9 原子パーセントを超えると共に H_{ci} が増加する。同様の傾向が B_r 及び BH_m についても観察できる。このことは、ホウ素含有量を約 9 原子パーセント以上に高めると、相の形成／分布又は磁化機構に変化を生じることを示している。これらのデータは、Nd-Fe-B 合金の場合、ホウ素濃度を約 6 原子パーセント以上に段階的に高めていくと、保磁粉末の磁気特性（例えば、 B_r 及び H_{ci} ）が着実に低下していく、そのような合金が商用的に使用されていない理由の説明になるだろう。

【0026】

【表 2】

B 含有量 (x)	T _s (°C)	B _r (kG)	H _{ci} (kOe)	BH _{max} (kOe)
5	結晶化	11.7	6.6	18.7
6	650	11.9	6.3	19.0
8	710	9.5	5.2	13.5
9		8.0	4.5	9.4
10		8.0	4.9	9.8
10.5		8.4	5.1	11.0

【0027】

実施例 2

(Nd_{1-y}La_y)_{9.5}Fe_{85.5}B₅ の合金インゴットは真空誘導溶融により調製される。ここで、y = 0, 0.05, 0.10 又は 0.15 である。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット铸造機を使用している。サンプル調製に約 1.5 - 2.0 m/sec のホイール速度を用いる。パーキン・エルマー社の示差熱分析装置 (DTA-7) により結晶化温度を決定する。メルト・スピニングで得たリボンは 650°C から 670°C の温度範囲で 10 分間熱

(18)

処理した。最適温度処理後に得られた磁気特性を表3に示す。La含有量を0から0.15原子パーセントに高めると、結晶化温度は569°Cから562°Cに低下する。Ndを若干のLaで置き換えた材料では、Br及びBH_{max}の両方がかなり増加することが観察された。これらのデータは、特定の合金組成でNdをLaで置き換えることにより若干の改善が見られることを示している。例えば、Brが上昇したが、H_{Ci}は僅かな低下になった。

【0028】

【表3】

La含有量(y)	T _c (°C)	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (kOe)
0	569	8.6	6.0	11.0
0.05	564	9.6	5.9	13.5
0.10	563	9.8	5.9	12.5
0.15	562	9.2	5.7	12.0

【0029】

実施例3

(Nd_{0.95}La_{0.05})_{9.5}Fe_{81.5-z}Cr_zB₉の合金インゴットを真空誘導溶融により調製する。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット铸造機を使用する。(Nd_{0.95}La_{0.05})_{9.5}Fe_{81.5-z}Cr_zB₉のサンプル調製に15-18m/secのホイール速度を用いる。パーキン・エルマー社の示差熱分析装置(DTA-7)により結晶化温度を決定する。メルト・スピニングで得たリボンは650°Cから670°Cの温度範囲で10分間熱処理した。最適温度処理後に得られた磁気特性を表4に示す。Crで置き換えた場合、Cr含有量を0から8.1原子パーセントに高めると、結晶化温度は608°Cから635°Cに上昇する。希釈効果により、Cr含有量が上昇すると共に、Brは低下する。Cr含有量を0から2.7原子パーセントに増加すると、H_{Ci}の有意な上昇が観察される。これらのデータは、FeをCrという耐熱金属で置き換えることにより、特定組成の磁性粉末でH_{Ci}を高められるが、Brの低下は僅かだったことを示している。

(19)

【0030】

【表4】

Cr含有量 (z)	T _s (°C)	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (kOe)
0	608	9.8	6.1	11.5
2.7	610	8.3	9.0	12.3
5.4	626	8.0	9.2	11.8
8.1	635	6.7	9.8	7.7

【0031】

実施例4

(Nd 0.95 La 0.05) _v Fe 88 - _v Cr₂B₁₀の合金インゴットを真空誘導溶融により調製する。ここで、_v = 7.5 から 11.5 である。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット铸造機を使用する。メルト・スピニングのために 1.5 - 2.5 m/sec のホイール速度を用いる。メルト・スピニングで得たリボンは 675 °C から 700 °C の温度範囲で 10 分間熱処理した。最適磁気特性を表5に示す。これらのデータは 10 原子パーセントのホウ素を含む合金で、TREの量を変えた場合の効果を示している。好ましい合金のTREは約 9.5 から 約 11.5 原子パーセントの範囲である。

【0032】

【表5】

v	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (MGoe)
7.5	8.5	3.1	8.1
8.5	8.3	4.0	10.0
9.5	8.6	9.1	12.6
10.5	9.2	11.1	16.5
11.0	9.5	13.2	18.0
11.5	9.9	5.0	14.0

【0033】

(20)

実施例5

(Nd_{0.95}La_{0.05})_{9.5}Fe_{88-w}Co_wCr₂B_{10.5}の合金インゴットを真空誘導溶融により調製する。ここで、w=0から10原子パーセントである。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット铸造機を使用する。メルト・スピニングのために15-25m/secのホイール速度を用いる。メルト・スピニングで得たリボンは675°Cから700°Cの温度範囲で10分間熱処理した。最適磁気特性を表6に示す。Ndと耐熱金属をLaで置き換えた合金粉末について、FeをCoで置き換えるとB_rが劇的に上昇するが、H_{Ci}の低下は僅かであった。

【0034】

【表6】

Co含有量(w)	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (MGOe)
0 and without Cr	7.8	6.2	9.5
0	8.4	10.3	14.0
2.5	8.4	10.2	14.1
5.0	8.5	10.2	14.1
7.5	9.1	10.3	15.8
10.0	10.0	9.5	19.8

【0035】

実施例6

(Nd_{0.95}La_{0.05})_{9.5}Fe₇₈M₂B_{10.5}の合金インゴットを真空誘導溶融により調製する。ここで、M=Cr、Ti、V、Mo又はNbである。米国特許第4,402,770 to Koonに開示された範囲の組成に対応しているが耐熱金属を添加しない対応組成と同じ方法で調製する。メルト・スピニングのために銅製ホイール付きの実験室用ジェット铸造機を使用する。メルト・スピニングのために15-25m/secのホイール速度を用いる。メルト・スピニングで得たリボンは650°Cから700°Cの温度範囲で10分間熱処理した。得られた最適磁気特性を表7に示す。この発明の好ましい実施例に基づき、Cr、Ti

(21)

、V、M o、Nbという耐熱合金を添加することで磁気特性が本質的に改善されていることを、これらのデータが確認している。

【0036】

【表7】

M	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (MGoe)
添加材レ	7.8	6.2	9.5
Cr	8.3	14.1	13.9
Ti	8.8	11.9	15.0
V	8.7	9.6	15.0
Mo	8.3	10.5	14.0
Nb	8.0	14.1	13.0

【0037】

実施例7

式 (Nd 0.95 La 0.05) 10.5Fe 67Co 10M₂B 10.5の組成を前例と同様に調製する。ここで、M=Ti、Nb、Cr、Hf、W、Zrである。米国特許第4,402,770 to Koonに開示された範囲の組成に対応しているが耐熱金属を添加しない対応組成と同じ方法で調製する。得られた組成の磁気特性を表8に示す。この発明に基づく組成で、Coを耐熱金属と組み合わせて添加した場合、H_{Ci}及びBH_{max}の特性が基本的に高くなっている。

【0038】

【表8】

(22)

M	B _r (kG)	H _d (kOe)	BH _{max} (MGoe)
添加なし	7.8	6.3	9.8
Ti	9.5	15.4	18.2
Nb	8.8	19.4	16.2
Cr	9.8	12.6	18.8
Hf	9.7	10.4	19.8
W	9.6	15.2	18.6
Zr	9.5	14.0	17.5

【0039】

従来の磁性合金組成を以下の表9に示す。“MQ”で示された組成は、MQP-Bの指定でMagnequench Internationalから商用的に入手できる。一方、“SSM”で示された組成はNEOMAXの指定で、Sumitomo Special Metals Co(住友特殊金属株式会社)から商用的に入手できる。これらの商用的に入手できる組成は、この発明の好みい組成と比較して、希土類元素の量が比較的高く、ホウ素の量は比較的低い。

【0040】

【表9】

組成	TRE	TM 原子パーセント	B
Nd ₂ Fe ₁₄ B	11.7	バランス	6.0
MQ	12.2-13.7	バランス	5.7-5.8
SSM	14.0-15.0	バランス	6.0-8.0

【0041】

表10は式Nd_{13.7}Fe_{80.7}B_{5.6}(MQP-A)及び式Nd_{12.2}Fe_{77.0}C_{0.5}B_{5.8}(MQP-B)という従来の合金組成の各相について、この発明に基づく式(Nd_{0.95}La_{0.05})_{11.0}Fe_{73.3}Co_{5.2}B_{10.5}(Comp. No. 1)及び式(Nd_{0.95}La_{0.05})_{9.5}Fe₇₅Co₅B_{10.5}(Comp. No. 2)の組成と比較する形で、モル分率パーセント表示で示している。MQP-A及び

(23)

MQP-Bの組成はMagnequench Internationalから
商用的に入手できる。

【0042】

【表10】

相	MQP-A	MQP-B	Comp. No. 1	Comp. No. 2
$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$	96	98	74	72
$\alpha\text{-Fe}$	0	0	1	5-7
Fe_3B	—	—	22-24.7	20
$\text{Nd}_{1.1}\text{Fe}_4\text{B}_6$	0.01-0.1	0.08-0.2	0.3-3	1-3
Nd-Fe eutectic	4	1.8	0	0

【0043】

この発明に基づくと、この発明の組成に基づき急速固化と熱処理を行って得た保磁性微少複合体の粉末から優れた性能を持つボンド磁石を製造できる。ボンド磁石は、例えばエポキシ、ナイロン6-6、ポリプロピレン(PPE)又は低融点金属のような適当な組成のバインダーを約0.5から約4重量パーセント使用して良い。ボンド磁石は適当な方法により調製して良い。例えば、合金を粉碎して、約200ミクロンの平均粒子サイズを有する粉末にする。粉末を約98重量パーセント、エポキシを約2重量パーセントの比率で粉末とエポキシを合わせて混合する。材料は手で混合する。次に混合物を金型(約10mm)に入れて、約7.5MT/cm²の圧力で約30秒間プレスする。得られたペレットを金型から外して、約175°Cで約1時間加熱する。次にペレットを取り出して、室温で冷却する。次に密度と磁気特性の適当な測定を行う。

【0044】

この発明の特別な実施例を例示用として既に示しているけれども、同業者から見れば、付属の請求範囲に規定されている発明内容から離脱せずに、この発明の内容について多くの変形を行えることは明らかであろう。

【図面の簡単な説明】

【図1】

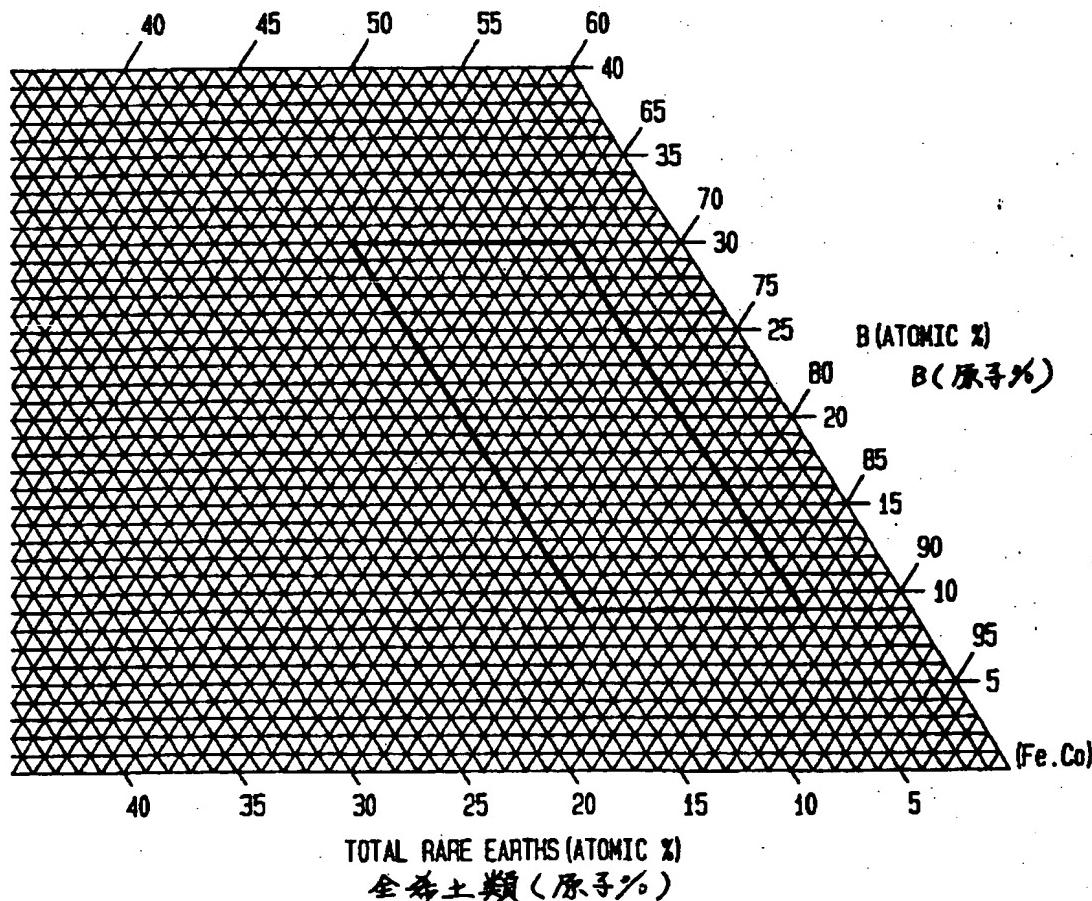
(24)

この発明の実施例に基づく微少複合体の磁性材料の全希土類 (T R E) 、鉄／コバルト (F e、C o) 、ホウ素 (B) の含有量を示す三元相線図である。

【図2】

N d、F e 及び種々の量のBから成る急速固化複合体についての一連のX線回析パターンであり、Bの量を高めた場合に微少構造が結晶からアモルファスへ変化することを示している。

【図1】



(25)

【図2】

FIG. 2A (パターンa)

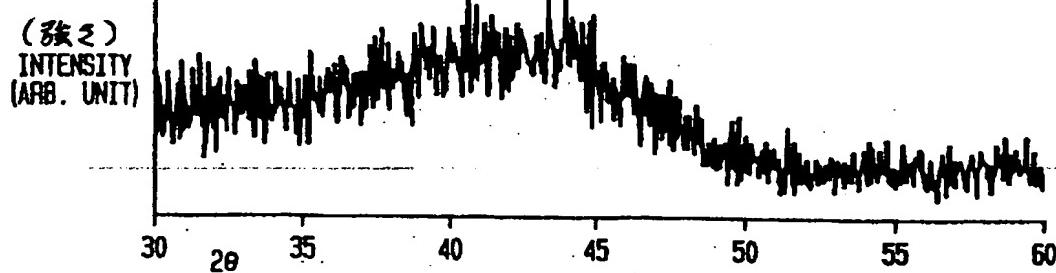


FIG. 2B (パターンb)

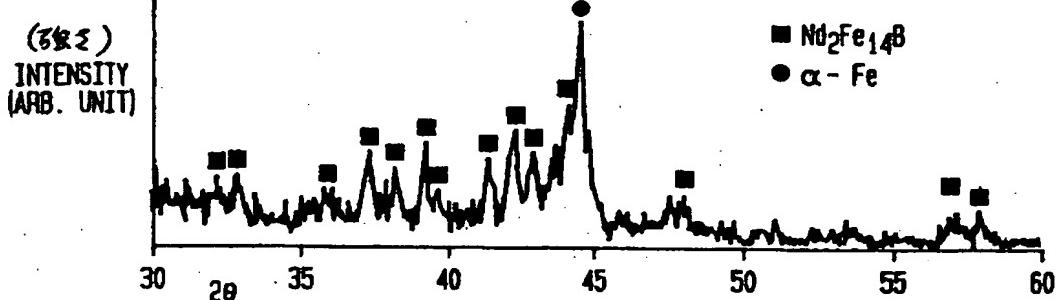


FIG. 2C (パターンc)

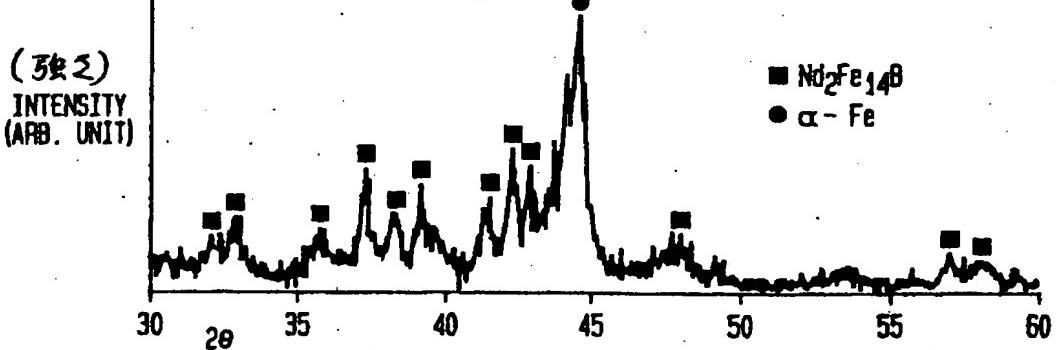
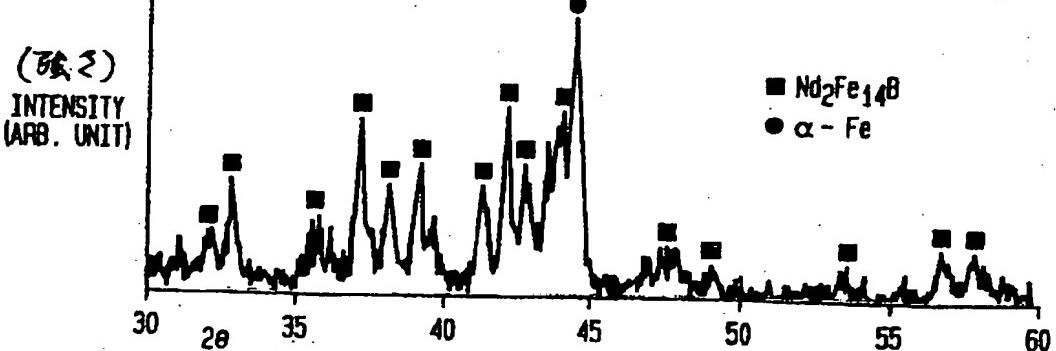


FIG. 2D (パターンd)



(26)

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In national Application No
PCT/US 98/21884

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 HO1F/057 C22C38/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 HO1F C22C		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 414 (E-1587), 3 August 1994 & JP 06 124825 A (MITSUBISHI STEEL MFG CO LTD), 6 May 1994 see abstract; example 17	1-8, 19-24
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 097, no. 004, 30 April 1997 & JP 08 335508 A (SUMITOMO SPECIAL METALS CO LTD), 17 December 1996 see abstract; examples 11,17	1-54
Y	US 4 409 043 A (KOON NORMAN C) 11 October 1983 cited in the application see column 2, line 34 - line 36 see column 3, line 42 - line 43	1-54
		-/-
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
<p>* Special categories of cited documents :</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the International filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the applicant but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"Z" document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the International search	Date of mailing of the International search report	
3 March 1999	12/03/1999	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5018 Patentlaan 2 NL - 2280 MV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Ashley, G	

(27)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.	
PCT/US 98/21884	

C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 012, no. 379 (E-667), 11 October 1988 & JP 63 127505 A (TAIYO YUDEN CO LTD), 31 May 1988 see abstract	
A	US 5 314 548 A (PANCHANATHAN VISWANATHAN ET AL) 24 May 1994	
A	EP 0 134 304 A (SUMITOMO SPEC METALS) 20 March 1985	

1

(28)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.
PCT/US 98/21884

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 4409043	A 11-10-1983	NONE		
US 5314548	A 24-05-1994	DE 69302329 D		30-05-1996
		DE 69302329 T		19-09-1996
		EP 0576055 A		29-12-1993
		JP 6220502 A		09-08-1994
EP 0134304	A 20-03-1985	JP 1802488 C		26-11-1993
		JP 5010807 B		10-02-1993
		JP 60034005 A		21-02-1985
		CA 1280012 A		12-02-1991
		HK 68690 A		07-09-1990
		JP 2110414 C		21-11-1996
		JP 5112852 A		07-05-1993
		JP 8009752 B		31-01-1996
		JP 1823407 C		10-02-1994
		JP 3170643 A		24-07-1991
		JP 5036495 B		31-05-1993
		US 4859255 A		22-08-1989
		US 5230749 A		27-07-1993

(29)

フロントページの続き

- (31) 優先権主張番号 60/062, 830
 (32) 優先日 平成9年10月22日(1997. 10. 22)
 (33) 優先権主張国 米国(US)
- (31) 優先権主張番号 60/062, 832
 (32) 優先日 平成9年10月22日(1997. 10. 22)
 (33) 優先権主張国 米国(US)
- (31) 優先権主張番号 09/001, 727
 (32) 優先日 平成9年12月31日(1997. 12. 31)
 (33) 優先権主張国 米国(US)
- (81) 指定国 EP(AT, BE, CH, CY,
 DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, I
 T, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ
 , CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML,
 MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, K
 E, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM
 , AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)
 , AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,
 BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, D
 K, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HR
 , HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP,
 KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, L
 V, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ
 , PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI,
 SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, U
 S, UZ, VN, YU, ZW)
- (72) 発明者 バウンズ, チャールス オー.
 米国 ペンシルヴァニア州 ヤードリイ,
 ピーチウッド レーン 22
- (72) 発明者 チャン, ウエン チェン
 台湾 チャイアーアイ, ダヤロード セ
 クション2 レーン495, No. 43, 5
 F 2
- (72) 発明者 チェン クン(国籍 中国)
 米国 ニュージャージー州 プリンスト
 ン, トリニティ コート#11 305
- Fターム(参考) 5E040 AA04 AA19 BB03 BD03 CA01
 HB11 NN01 NN04 NN06 NN17